

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

GAS CHANNEL PLATE-CUM-SEPARATOR FOR FUEL CELL

Patent Number: JP2000223133

Publication date: 2000-08-11

Inventor(s): YAMAJI ATSUSHI;; TANAKA YOSHIKAZU;; ISOBE KOICHI;; MIYASHITA HISAFUMI

Applicant(s): NIPPON CARBON CO LTD

Requested Patent: JP2000223133

Application Number: JP19990020254 19990128

Priority Number(s):

IPC Classification: H01M8/02; B29C43/02

EC Classification:

Equivalents:

Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a low-cost material of a gas channel plate-cum-separator for a fuel cell, made of an expanded graphite sheet and allowing enlargement of a strength.

SOLUTION: This gas channel plate-cum-separator made of expanded graphite for a fuel cell having plural ribs forming a gas channel on one side or both sides has a bulk density of 1.4-1.7. The gas channel plate-cum-separator is manufactured by pulverizing an expanded graphite sheet of 0.6-1.0 bulk density, and regulating to particle size of 500 μm maximum particle diameter and 150-300 μm mean particle diameter, adding and mixing a granular resin or a liquid resin with the ground graphite sheet, then forming it by molding, vacuum hot pressing, or the like.

Data supplied from the esp@cenet database - 12

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-223133

(P2000-223133A)

(43) 公開日 平成12年8月11日 (2000.8.11)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 4 F 2 0 4
B 2 9 C 43/02		B 2 9 C 43/02	4 G 0 4 6
// C 0 1 B 31/04	1 0 1	C 0 1 B 31/04	1 0 1 B 5 H 0 2 6
B 2 9 K 103:04			
B 2 9 L 31:00			

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平11-20254

(22) 出願日 平成11年1月28日 (1999.1.28)

(71) 出願人 000228338

日本カーボン株式会社

東京都中央区八丁堀2丁目6番1号

(72) 発明者 山路 敦

神奈川県横浜市青葉区得桂子田3-6-3

(72) 発明者 田中義和

神奈川県横浜市港南区丸山台2-36-30

(72) 発明者 磯部鴻一

東京都世田谷区岡本2-4-4

(72) 発明者 宮下尚史

神奈川県横浜市鶴見区中央3-2-1-405

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用ガス流路板兼セパレーター

(57) 【要約】

【課題】 燃料電池用ガス流路板兼セパレーターについて、膨張黒鉛シートからなり強度のアップした安価な材料を提供する。

【解決手段】 かさ密度0.6~1.09/cm³の膨張黒鉛シートを粉砕し、最大粒子径500μm、平均粒子径150~300μmの粒度とし、これに樹脂を添加混合し、最終形状に成形し、硬化する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】かさ密度0.6～1.0膨張黒鉛シートを粉碎して、最大粒子500 μ m、平均粒子径150～300 μ mの粒度に調整し、これに粒状樹脂又は、液状樹脂を添加、混合し、モールド成形、真空ホットプレス成型等の方法で、成形して得られる片面又は両面にガス流路となる複数のリブを有するかさ密度が1.4～1.7の膨張黒鉛製燃料電池用ガス流路板兼セパレーター。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は燃料電池用リブ付セパレーターに関し、特定の工程により得られる、かさ密度が1.4～1.7の膨張黒鉛複合材を使用した電導性、不浸透性、耐食性等にすぐれた燃料電池用リブ付セパレーターに関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は、水素、メタノール等と空気（酸素）とを電気化学的に反応させ、直接電気を発生させる。

【0003】この時、単位セル（1個の電池）から取り出せる電圧、電流が低いため、各単位セルを数十～数百個、直列または並列に積層、接続して使用される。

【0004】この際に、各単位セルに電導性をもたせ、単位セルに供給される燃料および空気の間隔境界膜の機能をはたすものが隔壁板（以下セパレーター）である。

【0005】このためセパレーターは、電気伝導性、気液に対する不浸透性が要求され、また燃料や空気、電解質（リン酸、硫酸等）、イオンに対する耐食性も要求される。

【0006】このような燃料電池用セパレーターに用いる材料として各種のカーボン材料や金属材料が用いられているが、以下のような問題がある。

【0007】まずカーボン材料としてガラス状カーボンまたは気体の不浸透化処理を行った炭素材料があるが、これらはいずれも材料費が高価である上に、加工費用、処理費用が高価のため燃料電池の実用化には大きな弊害となっている。

【0008】また、金属材料として、ステンレス、チタン系の金属等の耐食金属が使用されるが、電解質によるイオン化や加工の困難さ、重量が大となる等の問題がある。そこで、膨張黒鉛材料を燃料電池用セパレーターとして用いることが試みられている。

【0009】例えば、特開昭61-7570号には、膨張黒鉛シート（密度0.3g/cm³、板厚1mm）を複数枚積層し加圧成形した板厚1.8mm、密度が1.7g/cm³の燃料電池用隔壁板が記載されている。

【0010】特開昭61-7571号には膨張倍率の異なる膨張黒鉛をそれぞれ加圧成形して得られた膨張黒鉛シートを組合わせて積重ね加圧成形する板厚5mm、密度1.4g/cm³の燃料電池用溝付セパレーターが開示

されている。

【0011】また、特開昭61-10872号には、水もしくは有機溶剤を含浸した厚さ1mmの膨張黒鉛シート及び水もしくは有機溶剤を含浸しない厚さ1mmの膨張黒鉛シートを組合わせて積層し、予備成形したのち、乾燥し、加圧成形する全体厚さ5mmの溝付燃料電池用隔壁板の製造法が記載されている。

【0012】しかし、これらは、いずれも、積層体であるため、かさ密度を十分に上げにくく、リン酸等に対する不浸透性が不十分となる問題がある。また厚さが大きいため小型化やコストの点改善すべき点が残っている。

【0013】また、国際公開番号W097/02612号には、平均粒径が5 μ m～12 μ m、粉末全粒子の内80%以上の粒径が0.1 μ m～20 μ mの膨張黒鉛粉末と、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂あるいはその焼成物からなり片面又は両面にガス供給溝を形成したセパレーターが開示されている。

【0014】しかしこの方法において使用される膨張黒鉛は80～300倍に膨張した天然黒鉛であり、かさ密度が極端に小さく、膨張黒鉛を粉碎して粒径を調整することが設備的に難しいこと。樹脂と混合する技術も容易でなく樹脂量も多くなり易くなるため電気伝導性が低くなる。

【0015】さらに本出願人による特開平10-125337号には膨張黒鉛粉をかさ密度0.6～1.0の膨張黒鉛シートに予備成形した後、最終形状が得られる金型またはデザインロールにより、かさ密度1.0～1.7の最終成形品に加圧成形した燃料電池用セパレータを開示している。

【0016】本出願人による特開平10-125337号では、圧縮変形によりセル積層時の締め付けトルクが大きいとガス流路の断面積が減少する恐れがあり、電池本体のコンパクト化を図るためリブ幅及びガス流入口周囲の幅をできるだけ小さくする必要があるが、この部分の強度が十分に取れないとガス透過を十分に押さえられない。さらに剛性を高めこれを解決したセパレータが求められていた。

【0017】

【発明の課題】上記のような従来の材料の問題点に鑑み、本発明は、かさ密度が十分で、気液に対する不浸透性、電気伝導性、耐食性に優れ、小型で製作費も安価な燃料電池用セパレーターを提供し、燃料電池の実用化に寄与するものである。

【0018】

【課題解決の手段】上記の課題を解決するために本発明者が提案するのは、かさ密度0.6～1.0の膨張黒鉛シートを粉碎して、最大粒子径500 μ m、平均粒子径150～300 μ mの粒度に調整し、これに粒状樹脂又は液状樹脂を添加、混合し、モールド成型、真空ホットプレス成型等の方法で成形して得られる片面又は両面に

ガス流路となる複数のリブを有するかさ密度が1.4～1.7の膨張黒鉛製燃料電池用ガス流路板兼セパレータである。

【0019】以下に本発明を詳細に説明する。まずかさ密度0.6～1.0の膨張黒鉛シートを衝撃式粉碎機等の粉碎機を用いて粉碎し、最大粒子500 μ m、平均粒子径150～300 μ mの粒度に調整する。最大粒子径が500 μ mよりも大きいと、剛性が不均一となり、ガス流路溝の寸法安定性が不足する。

【0020】平均粒子径が150 μ mよりも小さいと樹脂量が過大となり電気伝導性が低くなる不都合が生じ、平均粒子径が300 μ mよりも大きいと剛性が不十分となる。

【0021】次に、粉状樹脂又は溶剤で粘度を調整した液状樹脂を添加混合する。樹脂として熱硬化性樹脂(フェノール樹脂、尿素樹脂、フラン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、けい素樹脂等)、熱可塑性樹脂(ポリプロピレン樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリカーボネイト樹脂、飽和ポリスチレン樹脂、ポリアミド樹脂、フッ素樹脂、ABS樹脂等)である。

【0022】樹脂量は膨張黒鉛シートの粉碎粉に対し外割で6～3wt%を添加する2wt%以下であると強度剛性が不足し、7wt%以上のときは電気伝導性が悪化してしまう不具合を生じる。

【0023】樹脂の添加混合は通常のみキサー等により行う。樹脂が粉体の場合はヘンシェルミキサー、V型ミキサー等の混合機が適当であり、樹脂液体の場合はナウタミキサー等の混合機が用いられるが、稀釈用溶剤例えばメタノール、キシレン等で5～10倍に稀釈した樹脂溶液を用いると均一に樹脂が分散添着するので作業性が良い。

【0024】混合物は所定重量計量されリブ、溝等最終形状が得られる金型により面圧100～500kg/cm²で加圧成形される。熱圧成形も可能であるが、効率の点から冷間成形したあと熱処理して硬化させるのが好ましい。

【0025】熱処理は前記成形体を加熱硬化炉に入れ、例えば常温から約1時間かけて150℃まで昇温し、その温度で30分間保持した後1時間以上の冷却時間をかけて50℃以下にする。

【0026】上記のようにして得られた本発明品は、厚さが2.3mmでかさ密度1.40～1.70[g/cm²]ガス透過率は10⁻⁶(cm²/sec)以下で気液に対する不浸透にすぐれている。

【0027】また電気比抵抗は成形方向(板厚方向)が30,000～10,000 $\mu\Omega$ -cmであり、成形方向と直角方向(板面方向)が1,000～1,100 $\mu\Omega$ -cmで電気伝導性にもすぐれている。

【0028】更にガス透過率を減少させるためには成形

後液状樹脂又は粉末樹脂を溶剤稀釈したものを減圧、浸漬加圧して含浸を行うこともできる。含浸後は加熱処理等により樹脂の硬化を行う。

【0029】本発明の燃料電池用セパレータは気液に対する不浸透性、電気伝導性、耐食性、寸法安定性にすぐれ加工費、材料費が安価である。本発明は燃料電池の実用化に資するところ大であり、工業上有用である。

【0030】

【実施例】

【実施例1】膨張黒鉛シート(かさ密度1.0)を奈良製造(株)自由粉碎機(M-5型)で粉碎し最大粒子径500 μ m、平均粒子径200 μ mの粉粒体を得る。この粉粒体にフェノール樹脂を4wt%添加混合し成形圧150kg/cm²で成形し、150℃に加熱して硬化させ、かさ密度1.50、板面方向の電気比抵抗が1,050 $\mu\Omega$ -cm、引張り強さ125kg/cm²の製品を得た。

【0031】

【実施例2】実施例1のフェノール樹脂にかえて、ポリアミド樹脂(ナイロン6)4wt%を添加し、成形した。120℃で加熱処理した。得られた製品のかさ密度は1.49g/cm²、板面方向の電気比抵抗1,100 $\mu\Omega$ -cm、引張り強さ123kg/cm²の製品を得た。

【0032】

【実施例3】実施例1のフェノール樹脂にかえて、フェノール樹脂4wt%を7倍のメタノールで溶解稀釈した溶液を添加し、混合成形した。150℃で加熱硬化させた。得られた製品のかさ密度は1.57g/cm²、板面方向の電気比抵抗970 $\mu\Omega$ -cm、引張り強さ130kg/cm²の製品を得た。

【0033】

【比較例1】実施例1で使用した膨張黒鉛シートの粉粒体を用いて、樹脂添加をしないで、成型圧150kg/cm²で成型したところ、かさ密度1.51、板面方向の電気比抵抗1,000 $\mu\Omega$ -cm、引張り強さ75kg/cm²の製品を得た。

【0034】実施例のものはいずれも比較例に対比して板面方向の電気比抵抗が同等で引張り強度が1.6倍以上であり従って剛性もアップし組込み時の締付圧力に耐えて変形量が小さくセパレータ材として燃料電池の実用化に寄与するものである。

【0035】

【表 1】

	樹脂種類と添加量（重量部）	成型圧 (kg/cm ²)	密度 (g/cm ³)	電気比抵抗 ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	引張り強さ (kg/cm ²)
実施例 1	7x/-b 樹脂 4wt%	150	1.60	1,050	125
実施例 2	8974F 樹脂 + (074wt%	150	1.49	1,100	123
実施例 3	7x/-b 樹脂 / 397/-b = 1/7	150	1.57	970	130
比較例 1	0	150	1.51	1,000	75

フロントページの続き

F ターム(参考) 4F204 AA29 AA37 AB18 AC01 AC04
 AG28 AH33 FA01 FB01 FF01
 FF06
 4G046 EA03 EA05 EB13 EC00 EC01
 EC02 EC06
 5H026 AA04 BB01 BB02 BB06 BB08
 CC03 EE06 EE18 HH01 HH05